

プログラム名：無充電で長期間使用できる究極のエコ IT 機器の実現

PM名：佐橋政司

プロジェクト名：交差相関電圧書込み磁気記録

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平成 28 年度

研究開発課題名：

交差相関係数増大法の開発

研究開発機関名：

国立大学法人 大阪大学 大学院基礎工学研究科

研究開発責任者

木村 剛

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

交差相関係数とは電界 E に対する磁化 M の応答性 ($\alpha = dM/dE$) や磁界 H に対する電気分極 P の応答性 ($\alpha = dP/dH$) で定義される係数であり、その増大をはかることは、電界書込みを原理とする新たな磁気記録原理の開発に重要な課題である。本研究開発課題では、バルクの特長として電気磁気効果を示す材料を対象として、交差相関係数 α を増大させるための手法を開発する。その目的達成のため、当該期間において、具体的に以下の研究を実施した。

(i) 前年度までの研究において、高圧下でマルチフェロイック物質の電気磁気効果の測定を可能とする測定系を構築し、 Cr_2O_3 単結晶試料の電気磁気特性の圧力効果測定をすでに行ってきた。平成 28 年度は、さらに詳細な測定を行い、第一原理計算の結果と比較するなど検討し、高交差相関係数・高動作温度を有するバルク試料合成や薄膜試料合成の指針を探る。とくに理論グループと共同での研究を推進し、 Cr_2O_3 ベース材料における高交差相関係数・高動作温度を有するバルク試料合成や薄膜試料合成の指針を提示する。

(ii) Cr_2O_3 以外の室温でバルク特性として電気磁気効果を示す物質を探求する。 $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$ 、 $\text{BaSr}(\text{Co,Zn})_2\text{Fe}_{11}\text{AlO}_{22}$ 等いくつかの六方晶フェライトが室温で電気磁気効果を示すことを本研究グループでは見出してきたが、これらの六方晶フェライト類似の物質をはじめとして、その他のフェライト材料など新規の室温動作電気磁気効果を示す材料、とくに 400 K で動作する物質の開発を試みる。さらにこれらの材料における室温でのドメイン構造およびその外場応答を明らかにする。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

2-1 進捗状況

(i) 前年度までに構築を進めてきた高圧下でマルチフェロイック物質の電気磁気効果の測定を可能とする測定系を用いて、我々のグループで作製した Cr_2O_3 単結晶試料の電気磁気特性、とくに電気磁気効果発現温度に対応する反強磁性転移温度の静水圧効果の詳細を調べた。平成 27 年度までの研究でも測定を試みていたが、圧力媒体の問題などにより十分な結果を示すことができていなかった。しかしながら、圧力媒体の再検討などを行うことにより測定が可能となった。さらに、実験で得られた結果を理論グループによる第一原理計算の結果と比較検討を行った。

(ii) Y 型六方晶フェライト $(\text{Ba,Sr})_2(\text{Co,Zn})_2(\text{Fe,Al})_{12}\text{O}_{22}$ は、らせん磁気秩序に起因する磁性と誘電性に強い相関が見られるマルチフェロイック物質であり、低温のみならず室温においても数十 mT の弱磁場によって数十 $\mu\text{C}/\text{m}^2$ 程の電気分極、すなわち電気磁気効果が発現する。フラックス法によって同物質の単結晶試料の育成を行い、その特異な磁気ドメイン構造とそれに対する磁場などの外場印加効果を円偏光軟 X 線共鳴回折法によって観察した。円偏光軟 X 線共鳴回折法を用いると、ヘリカル磁気構造に対応した波数に現れる磁気回折強度が円偏光のヘリシティに依存して変化することが知られており、これを利

用してヘリカルドメイン構造（すなわち、右巻き、左巻きの磁気ドメイン構造）の実空間観察を可能とする数少ない測定手法の一つである。

2-2 成果

(i) Cr_2O_3 は一次の電気磁気効果を有するため磁場中では反強磁性転移温度以下で強誘電体として振舞い、そのため磁気転移温度(ネール温度 T_N)において強誘電転移が付随するため、誘電率に発散的な異常を示すことが知られている。そこでネール温度の圧力依存性を調べるためにいくつかの静水圧下において誘電率の温度依存性を測定した。図 1(a)に Cr_2O_3 単結晶試料の磁場中における静水圧下での c 軸方向の誘電率の温度依存性の結果を示す。圧力の増加に伴ってネール温度で現れる発散的な誘電異常が高温側へと単調にシフトしていくことがわかる。図 1(b)にネール温度の静水圧依存性を示す。青いシンボルが実験結果を示しており、静水圧の印加によってネール温度が線形に上昇していくことが確認できる。また、図中の赤点線は小田、今村らによる第一原理計算およびモンテカルロシミュレーションから求められたネール温度の静水圧依存性である。図から明らかとなり、実験結果と理論予測が定性的にもよく一致する。これらの結果から、静水圧によって格子を縮めることにより Cr_2O_3 のネール温度を向上させられることが理論・実験の両面から明らかとなった。すなわち、格子の収縮によって Cr_2O_3 の電気磁気動作温度の向上させることが可能ということとなり、これは Cr_2O_3 の電気磁気動作特性の向上策の一つとして検討に値するものである。

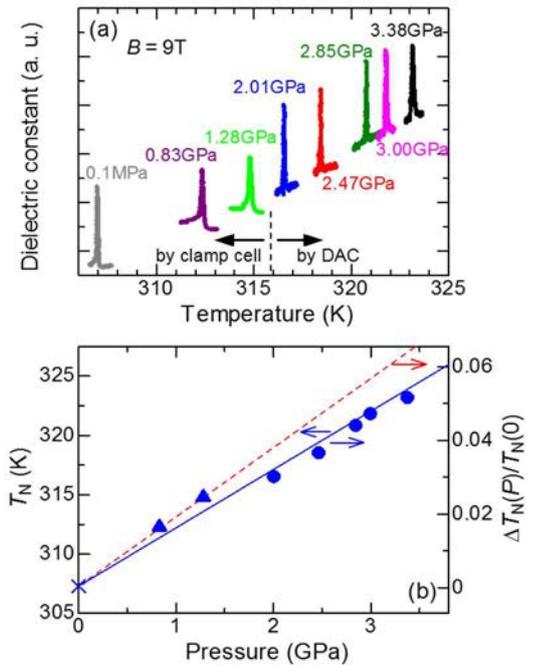


図 1: (a)様々な静水圧下における Cr_2O_3 単結晶試料の誘電率の温度依存性。発散的な誘電異常がネール温度に対応する。(b)ネール温度の静水圧依存性。

(ii) (0 0 1)面で劈開した清浄表面の $(\text{Ba,Sr})_2(\text{Co,Zn})_2(\text{Fe,Al})_{12}\text{O}_{22}$ 単結晶試料を用い、SPring-8 BL17SU にて Fe L_3 端にあたる 710.0 eV に入射 X 線エネルギーを固定して実験を行った。その結果、室温では格子由来の Bragg 反射に加えて格子不整合な $0\ 0\ 3n \pm \delta$ と格子整合な $0\ 0\ 3n \pm 1.5$ (n は整数)に 2 種類の反射が存在し、なおかつこれらの回折強度はともに円偏光のヘリシティに依存して変化することを見出した。この結果から本物質では、図 2 に示すような共に c 軸方向に伝播ベクトルを持った c 面内ヘリカル成分と c 軸平行反強磁性成分の足しあわせから成る磁気構造(Alternating Longitudinal Conical 構造)が実現していることを示唆している。またそれぞれの回折強度の円偏光依存性を利用し、X 線のビーム径を $15 \times 30\ \mu\text{m}^2$ 程に絞ることによって、ヘリカル

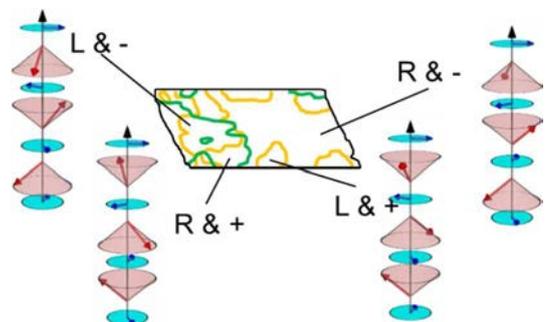


図 2: 室温電気磁気効果物質である Y 型六方晶フェライト $(\text{Ba,Sr})_2(\text{Co,Zn})_2(\text{Fe,Al})_{12}\text{O}_{22}$ において室温で実現するとされる磁気構造およびその 4 つのドメイン構造。中央の図は円偏光 X 線回折測定で観測された各ドメインの実空間分布の概要図。

成分と反強磁性成分に由来する独立した二種類のドメイン構造を分離して観測することに成功した。本結果は、室温電気磁気効果物質である Y 型六方晶フェライト $(\text{Ba,Sr})_2(\text{Co,Zn})_2(\text{Fe,Al})_{12}\text{O}_{22}$ においては、図 2 に示すような 4 つの磁気ドメインが存在し、さらに電場や磁場などの外場によりこれらのドメインを制御できる可能性を示唆している。

2-3 新たな課題など

実験および理論計算から Cr_2O_3 におけるネール温度の向上には格子収縮が効果的であることが明らかとなった。本研究では静水圧の印加により、それを実現したが、実際に応用に使うには圧力印加以外の方策（たとえば薄膜試料への基盤などからの歪）を考える必要がある。また、六方晶フェライト材料に関しては、4 つのドメイン状態の識別に成功したが、そのうまい制御を考える必要がある。

3. アウトリーチ活動報告

● 1

2016 年 7 月 21 日(木)に株式会社フロムページが主催する大学研究&学問発見のための国公私立大 合同進学ガイダンス「夢ナビライブ 2016」において、高校生向けに物質における電気と磁気の関わりに関して電気磁気効果等の研究に関して講義を行った。

● 2

2016 年 8 月 21 日(日)に日本物理学会が主催する科学セミナー「対称性とその破れ」において、大学生・教員・一般向けに物質における電気と磁気の関わりに関して電気磁気効果等の研究に関してセミナーを行った。